

(19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A) (11)特許出願公開番号  
**特開平8-185870**  
(43)公開日 平成8年(1996)7月16日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup> H 01 M 8/02 8/12	識別記号 B R	序内整理番号 F I	技術表示箇所
---	-------------	------------	--------

審査請求 未請求 請求項の数1 O.L. (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平6-326285  (22)出願日 平成6年(1994)12月27日	(71)出願人 390022998 東燃株式会社 東京都千代田区一ツ橋1丁目1番1号  (71)出願人 590000455 財団法人石油産業活性化センター 東京都港区虎ノ門四丁目3番9号  (72)発明者 伊藤 直樹 埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目3番1 号 東燃株式会社総合研究所内  (72)発明者 濑戸 浩志 埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目3番1 号 東燃株式会社総合研究所内  (74)代理人 弁理士 久保田 耕平 (外2名) 最終頁に続く
--	---

(54)【発明の名称】 固体電解質型燃料電池用セパレータ

(57)【要約】

【構成】 (A) クロムを5%以上含有する合金を含有する耐熱金属とセラミックスとから成るサーメットで構成されたセパレータ基体と、(B) 該基体のカソードガス対応面にそれがカソードガスと直接接触しないように設けた金属酸化物の保護膜とから成る固体電解質型燃料電池用セパレータ。合金はニッケル基合金、鉄基合金が、セラミックスはアルミナ、希土類系複合酸化物が、金属酸化物は酸化インジウム、S n ドープ酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、S b ドープ酸化スズ、酸化コバルト、酸化鉄、希土類系複合酸化物がそれぞれ好ましい。

【効果】 高緻密度、高強度、良好な電気伝導度を有し、耐熱性、耐食性に優れ、熱膨張率等の熱膨張特性を調整でき、しかも保護膜によりセパレータの構成成分のクロムやその酸化物の拡散を抑止しカソードへの悪影響を防止し、高いセル性能を長時間にわたり維持しうる。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) クロムを5%以上含有する合金を含有する耐熱金属とセラミックスとから成るサーメットで構成されたセパレータ基体と、(B) 該基体のカソードガス対応面にそれがカソードガスと直接接觸しないように設けた金属酸化物の保護膜とから成る固体電解質型燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、新規な固体電解質型燃料電池用セパレータに関するものである。さらに詳しくいえば、本発明は、高緻密度、高強度、良好な電気伝導度を有し、耐熱性、耐食性に優れ、しかも熱膨張率等の熱膨張特性を調整しうるという良好なセパレータ物性を保持しながら、さらにカソードに悪影響を与えない固体電解質型燃料電池用セパレータに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池は、水素、一酸化炭素、炭化水素等の燃焼性化学物質やそれを含有する燃料を活物質に用い、該化学物質や燃料の酸化反応を電気化学的に行わせ、酸化過程におけるエネルギー変化を直接的に電気エネルギーに変換させる電池であって、高いエネルギー変換効率を期待しうるものである。

【0003】中でも特に高い効率を期待しうるものとして、近年、第一世代のリン酸型、第二世代の溶融炭酸塩型に続く第三世代の固体電解質型燃料電池、中でも集積度の高い平板型のものが注目されている。図1は、この平板型の3段直列セルの固体電解質型燃料電池の1例の展開斜視説明図であって、各固体電解質板11の上面及び下面にそれぞれカソード12及びアノード13を一体形成して成る3層構造板をセパレータ14を介して接合集積し、両端には外部端子15、16をそれぞれ設けて構成されている。同様にして単位セルの積層数を増減することにより、多数のセルからなる多段直列型の電池に形成される。セパレータ14は隣接するセルの電極間を電気的に接続するとともに、上面に溝14a、下面に溝14bが形成されて隣接するセルのアノード側及びカソード側の各ガス通路を形成している。

【0004】しかし、このような平板型のものは、普通はセパレータがインターフェクタとも称されるように集電機能を有し、それに適合するような材質の金属、例えば耐熱合金で形成されているのに対し、固体電解質はジルコニアを主体とするセラミックスで形成されているため、両者間には、800~1000°Cという高温の電池作動温度に及ぶ環境条件の変動に伴って線膨張係数等の熱膨張特性にかなりの差異が生じるので、3層構造板とセパレータ間には応力による歪が生じ、さらには接合強度が低下したり、クラックが発生したり、接合部にすき間を生じてガスが漏れ、水素などの燃料と空気などの酸化剤ガスがクロスリークして活物質としての機能がそこ

2

なわれたりするおそれがある。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明者らは、先に、このような従来のセパレータのもつ欠点を改善すべく、ニッケル基合金、コバルト基合金、鉄基合金などの耐熱合金を含有する耐熱金属と、耐熱性無機系化合物類との一種のサーメットに属する焼結体より構成される所定燃料電池用セパレータを提案した(特願平3-212978号、特願平3-212980号、特願平3-2129

10 84号、特願平3-213087号、特願平3-244221号、特願平3-124647号、特願平3-124649号、特願平3-124659号、特願平3-124660号、特願平6-263306号)。このものは耐熱性、耐食性に優れ、ガス封止の安定性を向上させることができ、実用的に十分な強度、電気伝導度、熱膨張特性を有する。しかしながら、これらのサーメットを構成する耐熱合金は、通常、その主要な成分の一つとしてクロムを含有するが、このようなサーメット材料から成るセパレータは、その含有成分のクロムが電池運転中に該セパレータと接するカソード中に拡散し、カソード性能を低下させるという欠点がある。

【0006】本発明は、このような事情の下、高緻密度、高強度、良好な電気伝導度を有し、耐熱性、耐食性に優れ、しかも熱膨張率等の熱膨張特性を調整しうるという良好なセパレータ物性を保持しながら、さらにカソードに悪影響を与えない固体電解質型燃料電池用セパレータを提供することを目的としてなされたものである。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記の好ましい性質を有するセパレータを開発するために種々研究を重ねた結果、クロムを含有する耐熱金属/セラミックス組成のサーミットをそのままセパレータとして用いると、セパレータ自体としては良好な性能を発揮しても、気相や固相でクロム又はクロム酸化物がカソード中に拡散し、カソード性能を低下させることにより、セル全体の性能までも低下させてしまうこと、このようなセパレータについてそのカソードガスと接する面に金属酸化物の保護膜を設けることにより、これを抑止しうることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至った。

【0008】すなわち、本発明は、(1)(A) クロムを5%以上含有する合金を含有する耐熱金属とセラミックスとから成るサーメットで構成されたセパレータ基体と、(B) 該基体のカソードガス対応面にそれがカソードガスと直接接觸しないように設けた金属酸化物の保護膜とから成る固体電解質型燃料電池用セパレータを提供するものである。

本発明の好ましい実施態様としては、

(2) 前記(1)項記載の合金がニッケル基合金及び鉄基合金の中から選ばれた少なくとも1種であり、セラミ

ックスがアルミナ又は希土類系複合酸化物である前記(1)項記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、(3)セパレータ基体における前記(1)項又は(2)項記載の耐熱金属の体積比率が20~60%である前記(1)項又は(2)項記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、(4)金属酸化物が酸化インジウム、Snドープ酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、Sbドープ酸化スズ、酸化コバルト、酸化鉄及び希土類系複合酸化物の中から選ばれた少なくとも1種である前記(1)項、(2)項又は(3)項記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、(5)金属酸化物の保護膜の厚さが0.1~50μmである前記(1)項ないし(4)項のいずれかに記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、が挙げられる。本発明のさらに好ましい実施態様としては、(6)金属酸化物が酸化亜鉛である前記(1)項、(2)項、(3)項又は(5)項記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、(7)金属酸化物が $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (式中、 $0 < x \leq 0.4$ )及び $\text{LaMnO}_3$ の中から選ばれた少なくとも1種である前記(1)項、(2)項、(3)項又は(5)項記載の固体電解質型燃料電池用セパレータ、が挙げられる。

【0009】本発明のセパレータの基体を構成するサーメットは、クロムを5%以上含有する合金を含有する耐熱金属(以下、含Cr耐熱金属という)とセラミックスとを組成成分とする焼結体であり、この一方の成分の含Cr耐熱金属としては、5%以上好ましくは8~30%のクロムを含有する耐熱合金のみであってもよいし、クロムを含有する合金、好ましくは耐熱合金とニッケル、コバルト又は鉄のような耐熱性の金属元素との混合物であって、この全量に対してクロムを5%以上含有するものでもよい。耐熱合金は、クロム以外にニッケル、コバルト及び鉄の中から選ばれた少なくとも1種の金属を含むものが好ましく、このようなものとしては、好ましくはクロムを含むニッケル基合金や鉄基合金が、特に好ましくはインコネル600、ハステロイ800のようなNi-Cr系合金や、SUS410、SUS430、SUS630のようなFe-Ni-Cr系合金が挙げられる。これらの耐熱合金及び耐熱性の金属元素はいずれも単独で用いてもよいし、また2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0010】他方の成分のセラミックスは、耐熱性のものであれば特に限定されず、例えば導電性のもの及び非導電性のもののいずれも用いられる。導電性のものとしては、例えばランタンクロマイト系複合酸化物やイットリウムクロマイト系複合酸化物のような希土類系複合酸化物、酸化第二スズ、酸化インジウム、酸化亜鉛、炭化ケイ素などの炭化物系セラミックス、窒化物系セラミッ

クスなどが挙げられる。また、非導電性のものとしては、例えばアルミナ、シリカ、チタニアなどの酸化物系セラミックスが挙げられる。また、ムライト、スピネル、コーチュライト等の複合セラミックスでもよい。これらのセラミックスは単独で用いてもよいし、また2種以上を組み合わせて用いてもよく、中でも特にアルミナ、クリストバライトのようなシリカ、スピネル、ランタンクロマイト系複合酸化物、イットリウムクロマイト系複合酸化物などが好ましい。

10 【0011】固体電解質型燃料電池においては通常ジルコニア系固体電解質が用いられているが、このような電池において、セパレータの組成成分として好適なセラミックスは、含Cr耐熱金属が通常熱膨張率 $1.3 \sim 1.6 \times 10^{-6}$ (K<sup>-1</sup>)であることから、セパレータの熱膨張率をジルコニア系固体電解質の熱膨張率 $1.0 \sim 1.1 \times 10^{-6}$ (K<sup>-1</sup>)と合わせるような、熱膨張率 $5 \sim 9 \times 10^{-6}$ (K<sup>-1</sup>)のものであり、この点から、特に有利には、アルミナ、クリストバライトのようなシリカ、スピネル、ランタンクロマイト系複合酸化物、イットリウムクロマイト系複合酸化物が挙げられる。このようなセラミックスを用いることにより、本発明のセパレータに常用的のジルコニア系材料より成る固体電解質とほぼ等しい線膨張率等の熱膨張特性を容易にもたせることができる。

【0012】このような含Cr耐熱金属とセラミックスとを組成成分とするセパレータ基体においては、含Cr耐熱金属とセラミックスとの割合は適宜調整されうるが、好ましくは含Cr耐熱金属の体積比率を20~60%、より好ましくは30~50%とするのがよい。

【0013】また、セパレータ基体は、含Cr耐熱金属がマトリックスとして、セラミックスが分散質として存在するものが好ましく、さらに相対密度が90%以上であるものが特に好ましい。このようなものは、好ましくは、含Cr耐熱金属粉末と、それより小さい粒径のセラミックス粉末のそれより大きい造粒体との混合物を加圧成形後焼成することによって得られる。

【0014】さらに、セパレータ基体に、含Cr耐熱金属の体積比率が20~60%、好ましくは30~50%で、かつ含Cr耐熱金属がマトリックスとして、セラミックスが分散質として存在し、かつ相対密度が90%以上である前記複合体から成るものを用いると、 $1500 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ 以上の高い電気伝導度、 $25 \text{kgf/mm}^2$ 以上の高い曲げ強度をもたせることが可能となる。曲げ強度を高めることは、耐熱性、シール性を高め、薄膜化を進める上でも重要である。特に有利には、ニッケル基合金-アルミナ複合体で、該合金の体積比率が35~45%の範囲内にあるものが用いられる。また、相対密度が90%未満ではガスのクロスリークが発生しやすくなり、電池性能が劣化する傾向が見られる。

【0015】セパレータ基体の形状については、固体電解質型燃料電池のセパレータとして通常用いられるもの

であれば特に制限はないが、好ましくは図1に示すような平板状で、カソードガス通路及びアノードガス通路となる溝をそれぞれ上面及び下面に設けたものである。

【0016】本発明において、セパレータ基体には、そのカソードガス対応面にそれがカソードガスと直接接触しないように保護膜が設けられる。この保護膜は金属酸化物、好ましくは十分な電気伝導度をもつ金属酸化物であって、クロム又はその化合物の気相又は固相拡散を抑止でき、固体電解質型燃料電池の運転温度付近の高温下で酸化雰囲気中で安定である材料で構成される。このような保護膜材料に用いられる金属酸化物としては、例えば酸化インジウム、Snドープ酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、Sbドープ酸化スズ、酸化コバルト、酸化鉄、希土類系複合酸化物などが挙げられ、これらの中でも酸化亜鉛、希土類系複合酸化物中の $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ （式中、 $0 < x \leq 0.4$ ）及び $\text{LaMnO}_3$ の中から選ばれた少なくとも1種が好ましい。

【0017】前記保護膜において、緻密度などの膜質と膜厚とは、同等の効果を得るのに、膜質が緻密であればあるほど膜厚をより薄くしうるという関係にある。セパレータ基体におけるクロムの含量や存在形態等により影響されるが、例えば、膜厚は、相対密度が90%以上の緻密な膜である場合には $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲、相対密度が90%未満の場合には $10 \sim 500 \mu\text{m}$ の範囲などとされる。

【0018】本発明の新規なセパレータの製造は次のようにして行われる。すなわち、

(8) 前記サーメットから成るセパレータ基体を作製し、次いでこの基体の片方のカソード側に金属酸化物を被着させることによって保護膜を設ける。保護膜の厚さについては、保護膜の緻密度や、セパレータ基体におけるクロムの含量や存在形態等により影響されるが、通常 $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ の範囲で選ばれる。

【0019】この際に用いられるサーメットは、含Cr耐熱金属や含Cr耐熱金属源と、セラミックスやセラミック源を粉末状で混合したのち、非酸化性雰囲気下、例えば還元性雰囲気下や不活性雰囲気下などで、あるいは真空中で焼成することによって得られる。中でも、含Cr耐熱金属の体積比率が20~60%であり、含Cr耐熱金属がマトリックスとして、セラミックスが分散質として存在し、しかも相対密度が90%以上であるサーメットは、好適には、

(9) (a) 非造粒の耐熱合金粉末と(b)セラミックス粉末を造粒して調製されたセラミックス造粒体を、各平均粒径が次の関係式

セラミックス粉末の粒径<耐熱合金粉末(a)の粒径<セラミックス造粒体(b)の粒径

を満たすように選定し、これらを混合したのち、混合物を加圧成形し、非酸化性雰囲気下あるいは真空中で焼成することによって得られる。

【0020】この好適方法をさらに説明すると、先ず前記のようにして選定した各粉粒を完全に混合する。この際(b)の造粒物を破壊しないように留意する。次いで、得られた混合物を、加圧成形、例えば冷間静水圧プレス成形あるいは熱間静水圧プレス成形などを施したのち、セラミックスが焼結し、なおかつ含Cr耐熱金属が溶融しない温度範囲で、非酸化性雰囲気下、例えば還元雰囲気下や不活性ガス雰囲気下などや、あるいは真空中で焼成する。還元雰囲気下で焼成する場合、雰囲気中の水素濃度については特に制限はないが、好ましくは0.1~5%程度とするのがよい。また、焼成温度は1100~1500°Cの範囲内とするのが好ましい。セラミックスの焼結性は、その粉体の粒径にも依存するので、一次粒径が $0.05 \sim 5 \mu\text{m}$ の比較的細かいものを用いると焼結性を向上させることができる。

【0021】セパレータ基体は、所定形状、好ましくは図1に示すような両面溝付き平板状になるようにサーメットを製造することで、サーメット自体をそのまま用いるようにしてもよいし、上記のようにして得られたサーメットをさらに所定形状に成形してもよい。

【0022】次いで、セパレータ基体のカソードガス対応面にそれがカソードガスと直接接触しないように金属酸化物を成膜させる。この成膜法としては、プラズマ溶射法などの各種溶射法、スパッタリング法、CVD法、蒸着法、電解めっき法、無電解めっき法、スラリー塗布法などがある。成膜は酸化物の形でも金属の形でもよく、金属の形で成膜した場合にはさらに適当な温度で酸化雰囲気中で焼成して酸化物膜とする。酸化物として成膜した場合にも、膜の付着性や緻密度を向上させるため焼成処理を施してもよい。このようにして、所定の保護膜が設けられる。

【0023】  
【発明の効果】本発明のセパレータは、サーメット材料の優れた特性により固体電解質型燃料電池のセパレータ自体として優れた性質、すなわち高緻密度、高強度、良好な電気伝導度を有し、耐熱性、耐食性に優れ、しかも熱膨張率等の熱膨張特性を調整しうるという良好なセパレータ物性を保持しながら、さらにカソード側保護膜によりセパレータの構成成分のクロムやその酸化物などの化合物の拡散を抑止しカソードに悪影響を与えるのを防止し、セル全体としての高性能を長時間にわたり維持しうるという顕著な効果を奏する。また、本発明のセパレータは、適切な素材を用いることにより、その熱膨張率などの熱膨張特性を固体電解質とほぼ等しく整合させることができ可能である。例えば、固体電解質の素材がジルコニア系のものである場合、セパレータの素材として熱膨張率がジルコニア系素材より高い含Cr耐熱金属とジルコニア系素材より低いアルミニ、ランタンクロマイト系複合酸化物、イットリウムクロマイト系複合酸化物など

40 50 のセラミックスを組成成分とするものが用いられる。こ

のように熱膨張特性を整合させることにより、燃料電池における各部材の強固な接合が可能となり、ガス封止の安定性が向上し、電池特性が向上する。

【0024】特に、本発明のセパレータにおいて、サーメット材料として、含Cr耐熱金属の体積比率が20～60%であり、かつ含Cr耐熱金属がマトリックスとして、セラミックスが分散質として存在し、かつ相対密度が90%以上である前記複合体を用いた場合には、セパレータ自体として、高強度、良好な電気伝導度という特性を一層向上させることが可能となり、さらに優れた性能を發揮しうるので特に有利である。

#### 【0025】

【実施例】次に実施例によって本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されものではない。

#### 【0026】比較例

インコネル600とアルミナを体積比で4:6に混合したものを焼成して相対密度93%以上としたサーメットを50×50×5mmの平板に成形し、その両面にガス流路として深さ1.0mmの溝を設けて両面溝付き平板を作製し、これを比較のための固体電解質型燃料電池用セパレータとした。

#### 【0027】実施例1

比較例と同様にして作製した両面溝付き平板をセパレータ基体に用い、この基体の、セルとした時のカソードガスに相対されるようになる面すべてに、金属コバルトを電子ビーム蒸着法により付着させたのち、1000°Cの空気中で3時間焼成することによって、厚さ10μmで相対密度95%の酸化コバルト膜を成膜した。このようにして、所望の保護膜の被覆された固体電解質型燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0028】実施例2

実施例1の電子ビーム蒸着及び焼成による成膜法に代えて、常用の酸化亜鉛を用いたスパッタリングによる成膜法を用いた以外は実施例1と同様にして厚さ5μmで相対密度95%の酸化亜鉛膜を成膜した。このようにして、所望の保護膜の被覆された固体電解質型燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0029】実施例3

実施例1の電子ビーム蒸着及び焼成による成膜法に代えて、La<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub>粉末（平均粒径約5μm）をスラリー塗布法で塗布したのち、1200°Cの空気中で3時間焼成する方法を用いた以外は実施例1と同様にして厚さ50μmで相対密度80%のLa<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>M

nO<sub>3</sub>膜を成膜した。このようにして、所望の保護膜の被覆された固体電解質型燃料電池用セパレータを作製した。

#### 【0030】応用例1

図1の集合様式に従い、3段直列セルの固体電解質型燃料電池を作製した。固体電解質板11にはイットリアを8モル%添加したジルコニアである安定化ジルコニア製の50×50×0.2mmの板状物を用いた。空気通路側にLa<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub>粉末（平均粒径約5μm）

10をスラリー塗布法で厚さ0.1mmに塗布してカソード12とし、水素通路側にNiとジルコニアの重量比1対1のサーメット混合粉末をスラリー塗布法で厚さ0.1mmに塗布してアノード13とした。セパレータ14は実施例1で作製したものを用いた。この固体電解質板11とセパレータ14を図1のように積層し、固体電解質板21とセパレータ24の間に電池の運転温度付近で軟化するガラスを挟んでガス封止用とした。このガラスとしては電池の運転温度付近までの高温で水素に対して耐還元性があり、空気に対して耐酸化性があり、また耐水蒸気性のあるものを選ぶ。次いで、図2に示すように、こうして集積した電池21に円筒型のアルミナ製マニホールド22を取り付け、マニホールドと電池の間にはガラスを挟んでガス封止用とした。電気の取り出し部には白金リード線を溶接して電気的に接続した。このようにして作製した固体電解質型燃料電池を加熱し、1000°Cに保持してアノード側に水素、カソード側に空気を流し、発電させた。発電は5A定常運転で200時間行った。また、運転後にカソード中のCrの定量も行った。その結果を表1に示す。

#### 【0031】応用例2

セパレータを実施例2のものに代えた以外は応用例1と同様にして電池を作製し、発電し、カソード中のCrの定量を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0032】応用例3

セパレータを実施例3のものに代えた以外は応用例1と同様にして電池を作製し、発電し、カソード中のCrの定量を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0033】比較応用例

セパレータを比較例のものに代えた以外は応用例1と同様にして電池を作製し、発電し、カソード中のCrの定量を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0034】

#### 【表1】

	セル性能劣化率 (mV/hr)	運転後カソードのCr量 (atomic %)
応用例1	1	3.0
応用例2	1	1.4
応用例3	0.07	0.1
比較応用例	24	24.8

【0035】これより、比較例の保護膜なしのセパレータを用いた場合にはセル性能の劣化が著しく、カソード中のCr量も多いのに対し、各実施例の保護膜を設けたセパレータを用いた場合にはいずれもセル性能はほとんど劣化せず、カソード中のCr量も少なく抑えられていることが分かり、このことからセパレータ基体に被覆した保護膜によりカソード中へのCrの拡散が防止でき、セル性能が長時間にわたって維持できることが分かる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 平板型の固体電解質型燃料電池の1例の展開斜視説明図。

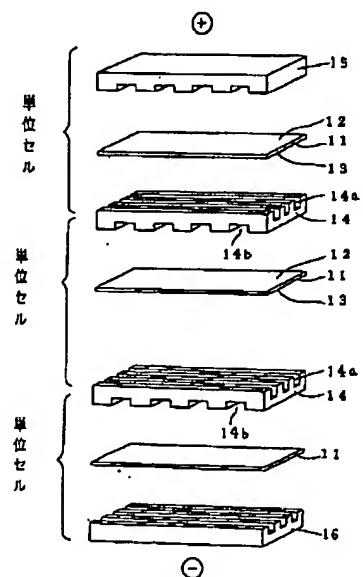
\* 【図2】 図1の電池本体をマニホールドに収納して完成品とした燃料電池の斜視説明図。

【符号の説明】

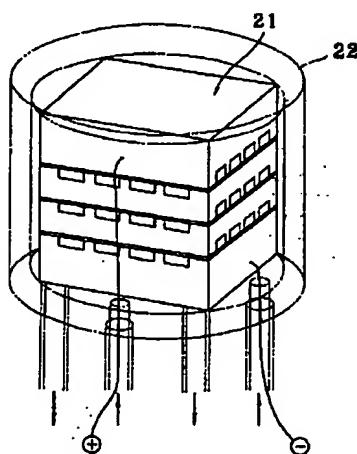
- 11 固体電解質板
- 12 カソード
- 13 アノード
- 14 セパレータ
- 14a, 14b 溝
- 15、16 外部端子
- 21 電池
- 22 マニホールド

\*

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 中田 圭一

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目3番1  
号 東燃株式会社総合研究所内

(72)発明者 吉田 利彦

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目3番1  
号 東燃株式会社総合研究所内